

## マグネシウム合金放出形成技術の開発

著者	附田 之欣
号	2689
発行年	2000
URL	<a href="http://hdl.handle.net/10097/7962">http://hdl.handle.net/10097/7962</a>

氏 名	附田之欣
授 与 学 位	博士（工学）
学 位 授 与 年 月 日	平成 13 年 3 月 26 日
学位授与の根拠法規	学位規則第 4 条 1 項
研究科，専攻の名称	東北大学大学院工学研究科（博士課程）材料加工プロセス学専攻
学 位 論 文 題 目	マグネシウム合金射出成形技術の開発
指 導 教 官	東北大学教授 久保 紘
論 文 審 査 委 員 会	主査 東北大学教授 久保 紘 東北大学教授 丸山 公一 東北大学教授 池田 圭介 東北大学教授 粉川 博之

## 論 文 内 容 要 旨

昨今，製品の薄肉化の要求が高まるにつれ，従来多用されてきたプラスチックに代わって剛性の高い軽金属，すなわちチタン，アルミニウム，そしてマグネシウムが注目されるようになってきた。特にマグネシウム合金は，密度が約  $1.8\text{Mg/m}^3$  であり，実用金属の中では唯一プラスチックに匹敵する軽い素材である。さらに，その原料は海水や地殻中に無尽蔵に存在し，かつ毒性もないことから，軽量材料として最も有望な金属として期待されている。また，従来心配されていた燃焼のしやすさや耐食性の低さも，精錬や溶解技術の発達の結果，現在では実用上ほとんど問題がないことが確認されている。

これらマグネシウム合金は，主として高圧鑄造法のダイカストにより成形されているが，ダイカスト法は溶湯の取り扱いが面倒な上，周辺機器の保守・管理も煩雑であるなどの問題点があった。これに対していくつかの代替プロセスが提案されてきたが，金属射出成形法もその中の一つである。本プロセスは米国のダウ・ケミカル社とバットル研究所により発明され，原理的にはプラスチックの射出成形法と同様の手法である。すなわち，固体原料チップをホッパから投入して，シリンダ内で半熔融状態を経て金型内に射出・凝固させた後，成形体として取出すものであり，安全性と生産性に優れている。

しかし，マグネシウム合金の実用化には解決すべき技術的課題も多い。例えば家電分野では，PC ケースなど極めて薄肉の製品形状が要求されるために，鑄造時の流動性の改善が重要なポイントとなっている。これに対して自動車分野では，従来マグネシウム合金の欠点とされてきたクリープ抵抗性などの耐熱性の向上とともに，安価で成形性に優れることが用途拡大のポイントとなる。またいずれの分野においても，昨今の地球環境問題に関連して，リサイクル性能が問われるのは必須である。

これらの工業技術的課題は材料とプロセスの両面からのアプローチ，すなわち合金設計のみならず，液相状態からの材料加工プロセスという学問に立脚した見地に立って初めて解決されるべきものである。そこで本研究では，マグネシウム合金の金属射出成形技術をさらに普及させることを最終目的として，リサイクルを含めた成形体の各種特性におよぼす成形条件の影響を明らかにした上で，家電分野で切望されている高流動性合金ならびに自動車分野で切望されている耐熱性合金をそれぞれ開発することを目的とした。本論文は，これら技術の研究成果をとりまとめたもので全編 9 章からなり，内

容を要約すると以下のようなもの。

第1章の序論では、本研究の背景、マグネシウム合金の概略、従来の加工製造方法、および研究目的についてまとめた。

第2章では、マグネシウム合金射出成形技術の特徴を射出成形プロセス、成形機の構造、および成形体の特徴をまとめた。

金属射出成形法は原料の溶解がシリンダ内に限られるため、作業者の安全性や工場の保全性が格段に向上する。また、一般のダイカストに比べて溶湯温度が 100K 近く低い結果、金型への焼付きが少なく、かつ熱負荷が小さくなるため金型寿命が延びる。成形体品質に関しては、溶湯温度が低いいため引けや割れなどの凝固欠陥が少なく、寸法精度が高い、そりが小さいなどの長所がある。また、スラリー温度の選択の幅が大きく、完全液相でも、数十%程度の固相を含むスラリーでも成形できるため、対象製品の形状や要求品質により、最適な固相率を選ぶことができる。さらにスクリュウによる攪拌効果により、従来は高価でかつ複雑であった金属基複合材料製造プロセスへの応用が可能である。

第3章では、金属射出成形法により作製した既存の各種ダイカスト用マグネシウム合金（汎用合金、高延性合金、耐熱性合金）に関して、室温における機械的性質と耐食性の検討を行った。特に、射出成形条件と得られた特性の相関を明らかにし、基礎的なデータベースを作成した。

その結果、汎用合金である AZ91D、高延性材である AM60B と AM50A、および耐熱材である AS41B 成形体に関して、融点を越えるあたりで機械的性質が飽和する傾向が認められた。また、金属射出成形材は、ダイカスト材と比較しても遜色無い室温引張特性が得られることが判明した。さらに耐食性に関しても、各合金ともダイカスト材に比較して優れた耐食性を示すことを確認した。これは、主として母相の初晶粒が微細であることに起因している。

第4章では、マグネシウムリサイクルの現状と再溶解法・直接法の特性を把握することにより、金属射出成形用リサイクル技術の可能性を検討した。本プロセスの社内スクラップに関するリサイクル方法には、二通りが考えられる。一つは、再溶解法である。これはランナ、スプルーや成形不良品をいったん再溶解してインゴットを作製した後、バージン材と同様の方法で再チッピングする方法である。これに対して直接法では、スクラップを再溶解せずに直接粉砕し、発生する微粉末を分級により取り除いて原料チップを作製する方法で、エネルギー消費が少ない。

各種マグネシウム合金のダイカスト、あるいは金属射出成形で発生したスクラップを用いて再溶解法によりリサイクル原料を作製し、引張試験片を作製した結果、いずれのリサイクル原料を用いた成形体でも、バージン材の特性と遜色無い値が得られており、ダイカストのカタログ値に比べても優れていることが明らかとなった。さらに、AZ91D を用いて直接法によりリサイクルし成形したサンプルでは、最大7回まで繰り返して成形した試験片の室温における引張試験の結果、平均値はもちろんのこと、最低値でもダイカストのカタログ値を大きく上回っていた。また、耐食性に関しては繰り返し回数が4回を越えるあたりから劣化が確認された。したがって実操業では、直接法チップにバージンチップを適量混ぜて使用することが望ましい。

第5章では、流動性評価方法と製品設計上必要な肉厚と充填時間の関係についてまとめる。従来より流動性評価方法には、注湯操作を伴わない吸引式の他、スパイラル型やヘビ型などの金型を用いた実鑄造実験があるが、いずれも一長一短がある。スパイラル型の金型を用いた実鑄造実験は簡便に流動性を評価できるが、肉厚を厚くしなければ流路断面積を大きくできないことや、背圧がかかりづらいなどの問題点を有しており、結果として実製品とは異なった流動凝固挙動が予想される。そこで、特に薄肉製品をイメージした評価用金型を作製し、新規な流動性評価方法について汎用マグネシウム合金である AZ91D の成形条件との関連を明らかにし、今後の製品設計に必要な基礎的なデータを取りまとめた。

スパイラル型流動性試験結果より、マグネシウム合金の射出成形法においては、ある程度の固相が含まれていても流動性は完全液相とほとんど変わらず良好であることが確認できた。薄肉平板型流動性試験方法は、スパイラル型に比べてやや実験が煩雑であるが、実鑄造である上に製品形状が実製品に近いので、最終的に得られる充填時間も実際操業のデータと極めて良い一致を示すことが判明した。

第6章では、高流動性マグネシウム合金の開発を行った。現在、汎用合金として広く実績のある AZ91D は優れた流動性を示すことが知られているが、さらなる流動性改善が必要である。したがって、新規のマグネシウム合金開発が必要になるが、その他に強度、耐食性やコストにも細心の注意を払った合金設計が求められる。

そこで、既存合金 AZ91D の基本成分を熱分析を用いて見直すとともに、添加元素の流動性と機械的性質におよぼす影響を検討し、新規高流動性合金の開発を試みた。その結果、Mg-Al-Si 系において従来材よりも流動性が高く高強度の合金が見い出された。さらに本合金の耐食性および塗装密着性も良好であることが確認された。

第7章では、耐熱性マグネシウム合金の開発についてまとめた。マグネシウム合金の自動車部品への採用を促進するためには、高温での機械的性質のさらなる向上が必要である。そこで、安価でかつ鑄造性に優れた耐熱性マグネシウム合金の開発を目的として、金属射出成形法により各種合金の鑄造性を評価し、高温における機械的性質におよぼす添加元素と成形条件の影響をミクロ組織との関連において検討した。

まず、従来期待されていながら実用化の遅れていた AE42 に関して、金属射出成形により低温成形が可能であり、焼き付きが低減ことを確認したが、固相率の増加により高温特性が低下することが判明した。さらに、既存合金である AM60B への Ca の添加が耐熱性を大幅に向上させ、Al 量の増加が鑄造性を改善することを見い出した。これらの知見をもとに、Mg-Al-Ca 系合金に各種の元素を添加して各種特性を検討した結果、微量の Sr 添加により従来材のクリープ特性を大きく上回る新規な耐熱性マグネシウム合金の組成を最適化した。また本合金は固相率の増加によっても、高温特性がそれほど劣化しないことも明らかとなった。

第8章では、第7章で提案した新規耐熱性 Mg-Al-Ca 系合金に関して、平均情報をX線回折と熱分析から、またと局所的構造を電子顕微鏡により解析し、クリープ変形挙動との関連性を検討した。

本系合金の粒界にはネットワーク状に発達した化合物が観察されるが、SEM 分析では Al と Ca の濃化が確認されている。さらに TEM を用いた組成分析の結果、従来報告されていなかった Mg-Al-Ca 三元共晶化合物の存在が示唆された。また、初晶粒子内には溶質原子がほとんど存在しないことも明らかとなった。本系合金の粒界組織は応力負荷時、静的時効時にかかわらず非常に安定であることより、Ca 添加による高温強度増加の効果は、粒界上の共晶化合物のネットワークが発達し、かつ熱的に安定となるためと考えられる。さらに、粒内の転位は動的に生じた 100nm 程度の析出物によってピン止めされていることが確認され、粒内も強化されていると考えられる。また、粒内に生じている 10nm 程度の析出物は、高温曝露により析出したものと思われるが、この析出物は非常に微細で、かつ量も多いことから、転位が主に変形の担い手となる高応力下において、クリープ変形の有効な障害物になるものと考えられる。

第 9 章は本論文の総括であり、各章ごとの要点をまとめた。

本研究の特徴は、従来より軽量構造材料として期待されておりながら実用化が遅れていたマグネシウム合金を、作業者や地球環境に対する負荷の小さい金属射出成形というユニークな技術を用い、従来法で作製された試験片と同等以上の特性が得られることを実証し、さらに各分野で要望されていた新規な工業材料を開発したところにある。本研究で得られた結果は、各種のマグネシウム合金製品を金属射出成形技術を用いて実用化する上で必要不可欠な技術に位置付けられ、今後の大きな発展が期待される。

# 論文審査結果の要旨

工業製品の薄肉化の要求が高まるにつれ、剛性の高い軽金属であるマグネシウム及びその合金が注目されるようになってきた。本研究の特徴は、以前より軽量構造材料として期待されておりながら実用化が遅れていたこのマグネシウム合金を、作業者や地球環境に対する負荷の小さい金属射出成形という技術を用い、従来法であるダイカストで作製された試験片と同等以上の特性が得られる新規な工業材料を開発したところにある。研究開発の目標は、1) 家電分野での PC ケースなど極めて薄肉の製品作製のための casting 時の流動性の改善、2) 自動車分野での応用で要求されるクリープ抵抗性などの耐熱性の向上、3) 安価で成形性に優れる材料の開発であり、それらの改善が用途拡大のポイントとなる。また、4) いずれの分野においても、昨今の地球環境問題に関連して、リサイクル性能が問われるのは必須である。これらの工業技術的課題は材料とプロセスの両面からのアプローチ、すなわち合金設計のみならず、液相状態からの材料加工プロセスという学問に立脚した見地に立って初めて解決されるべきものである。

そこで本研究では、このマグネシウム合金の金属射出成形を工業技術として確立することを最終目的として、1) リサイクルを含めた成形体の各種特性におよぼす成形条件の影響を検討した。さらにその上で、2) 家電分野で切望されている高流動性合金ならびに、3) 自動車分野で切望されている耐熱性合金をそれぞれ開発した。その際、流動性に関しては新規な評価方法を提案し、実験的に得られた金型内充填時間が実操業結果と極めて近いことを明らかにした。また耐熱性に関しては、マクロおよびミクロの両面から金属学的検討を行い、優れた耐熱性発現のメカニズムに関して考察を行った。

本研究で得られた結果は、各種のマグネシウム合金製品を金属射出成形技術を用いて実用化する上で必要不可欠な技術に位置付けられ、今後の大きな発展が期待される。

よって、本論文は博士（工学）の学位論文として合格と認める。